高周波酸素プラズマによる低温灰化の生薬学的研究への応用; ウワウルシとその
代用品コケモモならびに類似品のシュウ酸カルシウムによる鑑別法

梅本光一郎,^{1a)} 穂積啓一郎^{1b)}
京都薬科大学,^{1a)} 京都大学薬学部^{1b)}

Applications of Low-Temperature Ashing with High-Frequency Oxygen Plasma in
Pharmacognostical Studies; Identifications of Crude Drugs *Uvae Ursi Folium* and
Vitis-Idaeae Folium and Their Related Plants by Calcium Oxalate Crystals

KOUICHIRO UMEMOTO,^{1a)} KEIICHIRO HOZUMI^{1b)}

Kyoto College of Pharmacy^{1a)} and Faculty of Pharmaceutical Sciences, Kyoto University^{1b)}

(Received March 25, 1971)

Microscopic observations of ashed tissues provided by the low-temperature plasma ashing of plant leaves and other specimens have been extensively applied in plant taxonomical and morphological studies. In the present work, calcium oxalate crystals in the ashed tissues were taken up for the identification of the crude drug, "*Uvae Ursi Folium*", the analogous drug "*Vitis-Idaeae Folium*," and other closely related plants involving *Gaultheria miqueliana* TAKEDA, *Gaultheria adenothrix* (MIG.) MAXIM., and *Vaccinium uliginosum* LINN. "*Uvae Ursi Folium*" has been characterized by solitary crystals and crystals sands deposited along the netted vein in extremely high density, while practically no crystal has been observed other than along the vein. In "*Vitis-Idaeae Folium*", clustered crystals are irregularly arranged in low density almost only along the costa. *Gaultheria miqueliana* TAKEDA contains clustered crystals distributed homogeneously in the ashed tissue with low density. *Gaultheria adenothrix* (MIG.) MAXIM. has been characterized by clustered crystals deposited along the costa in high density. No crystal has been found in the ashed tissue of *Vaccinium uliginosum* LINN. under crossed Nicols.

著者らは、高周波酸素プラズマによる低温灰化法を用いてセンナ葉、インドゴムノキの葉、竹葉などを灰化し、灰像中の結晶の顕微鏡的観察によって植物の分類学、形態学的研究および生薬の鑑別、生薬の原植物の同定、その他いろいろな分野の研究上に広く応用ができることを示唆した。²⁻⁷⁾

今回尿道防腐薬として広く繁用されている生薬、ウワウルシ中に含まれているシュウ酸カルシウムに着目し、その代用品のコケモモならびに類似品のシラタマノキ、アカモノおよびクロマメノキをとりあげ、シュウ酸カルシウムによる鑑別法の確立を試みた。ウワウルシとコケモモおよびシラタマノキなどは、形態的な鑑別が困難な代表的なものの一つである。特にカット生薬の場合は一層困難である。しかしこの新しい低温灰化法によって試料を灰化し、その結晶像を観察すればそれらの鑑別は一目瞭然であることを知った。

1. ウワウルシ *Arctostaphylos uva-ursi* SPRENGEL 京都薬科大学標本(市場品)

1.1 主脈部 主脈上には単晶、砂晶、またはそれらが混在した数列の結晶体系が立体的に配列する (Fig. 1-A, B). しかし脈を離ればほとんど結晶体はなく、直交ニコルの下では暗視野となる。各結晶体系における結晶体の配列密度は、ほとんどすき間のないほどの高密度であり、これらの結晶体にいんべいされて灰化後における

- 1) Location: a) Yamashina Misasagi, Higashiyama-ku, Kyoto; b) Yoshida Shimoadachi-cho, Sakyo-ku, Kyoto.
- 2) 梅本光一郎, 穂積啓一郎, *Chem. Pharm. Bull.* (Tokyo), **19**, 217 (1971).
- 3) 梅本光一郎, 穂積啓一郎, 薬誌, **91**, 828 (1971).
- 4) 梅本光一郎, 穂積啓一郎, 薬誌, **91**, 844 (1971).
- 5) 梅本光一郎, 穂積啓一郎, 薬誌, **91**, 849 (1971).
- 6) 梅本光一郎, 穂積啓一郎, 薬誌, **91**, 906 (1971).
- 7) 梅本光一郎, 穂積啓一郎, 薬誌, **91**, 889 (1971).

主脈の残存状態は判然としない。しかしこの結晶体の分布状態から脈の存在位置が明確に判別できる。結晶体は、三角形、四角形、ひし(菱)形、長だ円形、その他いろいろな形状を呈する大小さまざまな単晶や砂晶であり、直交ニコルの下ではいろいろな縞模様が観察される (Fig. 1-C,D)。またこれらの結晶体列を鏡検するときにおいて、焦点の深浅度の差から結晶体が維管束の上下両面側に配列しているのが、明確に判別できる。これらの現象は、ウワウルシにおいてきわめて特徴的である。

Fig. 1. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Crude Drug
Uvae Ursi Folium (costa)

normal light; A: $\times 100$ crossed nicols; B: $\times 100$ C,D: $\times 400$

1.2 葉肉部 主脈部と同様、脈上には大小さまざまなシュウ酸カルシウムの単晶や砂晶が配列し (Fig. 2-A,B), それらの結晶体の形状ならびに配列状態は主脈上のものと全く同一である (Fig. 2-C,D,E)。しかし脈上に配列する結晶体列の数は、主脈部の場合と比してかなり少なくなり、細脈になると脈の上下両面側にそれぞれ配列する結晶体列の数はほとんど1列、すなわち計2列である。脈の残存状態は主脈部の場合と同様、高密度に配列するシュウ酸カルシウムの結晶にいんべいされて明確でない。

1.3 辺縁部 脈上には主脈、葉肉部の脈上のものと全く同形、同大のシュウ酸カルシウムの単晶、砂晶が高密度に存在する (Fig. 3-A,B)。しかし脈の末端部においては、結晶体が全く存在しない。一方、仮導管のらせん状の紋様が、脈の末端部では明確に観察される (Fig. 3-A)。また辺縁にはまれに砂晶が存在する。

1.4 葉先部 葉先には、まれにきわめて微細な結晶が存在する以外には結晶体は存在せず、葉先近くの脈上には主脈部、葉肉部および辺縁部の脈上のものと全く同一のシュウ酸カルシウムの単晶、砂晶が高密度に配列する (Fig. 4-A,B,C,D)。しかし辺縁部の場合と同様、脈の末端部においては仮道管のらせん状の紋様が明瞭に残存する (Fig. 4-A) が、結晶体は存在しない。脈外には結晶体は存在しない。

2. コケモモ *Vaccinium vitis-idaeae* LINNAEUS 京都薬科大学標本(市場品)

2.1 主脈部 主脈を構成する維管束の形骸は認められないが、主脈の存在位置はわずかに判別できる (Fig.

Fig. 2. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Crude Drug Uvae Ursi Folium (mesophyllum)

normal light; A: $\times 100$ crossed nicols; B: $\times 100$ C,D,E: $\times 400$

Fig. 3. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Crude Drug Uvae Ursi Folium (margin)

normal light; A: $\times 100$ crossed nicols; B: $\times 100$

Fig. 4. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Crude Drug *Uvae Ursi* Folium (apex)

normal light; A: $\times 40$ C: $\times 100$ crossed nicols; B: $\times 40$ D: $\times 100$

Fig. 5. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Crude Drug *Vitis-Idaeae* Folium (costa)

normal light; A: $\times 100$ C: $\times 400$ crossed nicols; B: $\times 100$ D: $\times 400$

Fig. 6. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Crude Drug *Vitis-Idaeae* Folium (mesophyllum)
normal light; A: $\times 100$ crossed nicols; B: $\times 100$

5-A). その主脈上にはウワウルシとは全く異なって、集晶が存在する (Fig. 5-A,B). その分布度は疎密の点でかなり不規則である。個々の集晶の大きさにも比較的差异があり、また形状も比較的不規則で、整形を呈するものは少なく、円形または放射状に配列する結晶群を形成する場合が多い (Fig. 5-C,D). 脈上には集晶以外に砂晶が散在し、きわめてまれに単晶が存在する。しかし脈外にはシラタマノキ、アカモノとは全く異なって集晶は存在しない。

2.2 葉肉部 灰化後における脈の形骸はあまり明らかでなく (Fig. 6-A), かつウワウルシとは全く異なって脈上には結晶体がほとんど存在しない。直交ニコルの下ではほとんど暗視野となるが、ときどき砂晶 (Fig. 6-B), まれに集晶が存在し、光輝を与える。

2.3 辺縁部 ウワウルシの場合とは全く異なって、直交ニコル下では葉肉部と同様にほとんど暗視野となるが、きわめてまれには主脈上のものと同大の集晶が、辺縁近くに存在することがある。辺縁には砂晶がまたきわめてまれに単晶が存在する。一般に脈の形骸は、葉肉部の場合と同様ほとんど不明瞭であり、かつその脈上には結晶体は存在しないが、脈の末端部においては、脈を構成する仮導管のらせんの紋様が明瞭に残存する (Fig. 7).

2.4 葉先部 葉先にまで主脈が達し、その部分

Fig. 7. Ashed Tissue of Crude Drug *Vitis-Idaeae* Folium (margin)

$\times 400$

Fig. 8. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Crude Drug *Vitis-Idaeae* Folium (apex)
normal light; A: $\times 100$ crossed nicols; B: $\times 100$

Fig. 9. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Leaves of *Gaultheria miqueliana* TAKEDA (costa)

normal light; A: $\times 40$ C: $\times 100$ crossed nicols; B: $\times 40$ D: $\times 100$

には主脈部のものと同一の結晶が存在して (Fig. 8-A,B), ウワウルシの場合とは全く異なった灰化像を示す. また辺縁部と同様, 主脈以外の葉脈の末端部では, 仮導管の形状が明らかである. また葉先にはまれに砂晶が存在する.

シラタマノキ *Gaultheria miqueliana* TAKEDA 山梨県, 甲斐駒ヶ岳 (自生品)

3.1 主脈部 主脈の維管束の形骸は認められないが, 主脈の存在位置は判明する (Fig. 9-A,C). その主脈上にはウワウルシの場合とは全く異なって, コケモモ, アカモノと同様集晶が存在する. しかし脈外にも多数の集晶が分布する (Fig. 9-A,B,C,D). この点において, コケモモとは完全な差異が認められる. また脈上における集晶の分布度は, コケモモの場合よりもさらに不規則であり, 疎密の差がいちじるしい (Fig. 9-B). 各々の集晶の形状は, ほぼ整形であるが, 一般に脈外のものよりも不整であり, またときどき集晶を構成する結晶塊が円形, 放射状に配列したような結晶群を形成する. また脈上には砂晶がきわめて疎に存在する (Fig. 9-D). 脈外における集晶は, アカモノのように特に主脈の近辺に高密度に分布するという現象はみられなく, ほぼ均一に分布する (Fig. 9-A,B). しかし主脈部から葉肉部へ移行するに従って, 集晶の分布度がやや疎になっていく傾向がある.

3.2 葉肉部 主脈部とは異なり, 脈上にはほとんど集晶は存在しない (Fig. 10-A). しかしきわめてまれに存在するときがある. また脈上には砂晶が存在する. 脈外には, やや形状の整った集晶が多数分布する (Fig. 10-B,C). しかしその分布度はアカモノに比して疎である. また辺縁に近づくに従って, やや疎になる傾向がある. ときどき円形または放射状に配列した結晶群が混在する (Fig. 10-C).

3.3 辺縁部 集晶が分布するが (Fig. 11-A,B), その分布度は葉肉部に比して疎である. またアカモノの場合に比しても疎である. 辺縁に砂晶が存在する.

4. アカモノ *Gaultheria adenothrix* (MIG.) MAXIM. 京都市, 花背峠 (自生品)

4.1 主脈部 主脈は比較的明瞭に残存する (Fig. 12-A,C) が, 主脈を構成する仮導管などの形骸は認められ

Fig. 10. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Leaves of *Gaultheria miqueliana* TAKEDA (mesophyllum)
normal light; A: $\times 100$ crossed nicols; B: $\times 100$ C: $\times 400$

Fig. 11. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Leaves of *Gaultheria miqueliana* TAKEDA (margin)
normal light; A: $\times 100$ crossed nicols; B: $\times 100$

ない (Fig. 12-E). ウワウルシの場合とは全く異なって、脈上には集晶が不規則に存在する (Fig. 12-A,B). またコケモモとは全く異なって、シラタマノキの場合と同様脈外にも集晶が多数分布するが、特に主脈の近辺においては、主脈にそって主脈の両側に最も高密度に分布する (Fig. 12-A,B,C,D). この点において、シラタマノキとはかなりの差異が認められる。脈上の集晶はその大きさにおいて大小の差がかなりあるが、脈外の集晶に比して一般的に小形であり、その形状も不規則で整っていないものが多い (Fig. 12-E,F). また脈上には砂晶、まれに

Fig. 12. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Leaves
of *Gaultheria adenothrix* (MIG.) MAXIM. (costa)

normal light; A: $\times 40$, C: $\times 100$, E: $\times 400$
crossed nicols; B: $\times 40$, D: $\times 100$, F: $\times 400$

単晶が存在することがある。脈外の集晶は、脈の近辺のものを除いて、一般的に脈から離れるに従ってその分布度が比較的疎になっていく傾向がある (Fig. 12-A,B). しかし集晶の大きさは、ときどきやや大形のものが混在する以外はほぼ均一であり、その形状も集晶を構成する各結晶粒がやや規則的に放射状に集合した形を呈する (Fig. 12-C,D,E,F).

4.2 葉肉部 主脈部と同様、脈の形骸は比較的よくとどめているが (Fig. 13-A,C), 仮導管などは認められない。脈上にはきわめて不規則に、かつ疎に大小の集晶が存在する (Fig. 13-A,C). また脈外には集晶が多数存在するが (Fig. 13-A,B,C,D), 主脈部のように脈の近辺に特に高密度に分布するという現象は認められない。しかし分

Fig. 13. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Leaves
of *Gaultheria adenothrix* (MIG.) MAXIM (mesophyllum)

normal light; A: $\times 40$, C: $\times 100$
crossed nicols; B: $\times 40$, D: $\times 100$, E: $\times 400$

布度は、辺縁に近づくに従って疎になる傾向がある。また集晶は比較的整形を呈するが (Fig. 13-E), その大きさは辺縁に近づくに従ってやや小形となる傾向がある。しかし集晶の大きさはシラタマノキの場合に比して、一般的にわずかに大きい。ときどきやや大形の集晶が混在する。

4.3 辺縁部 集晶が分布するが、その分布度は主脈部、葉肉部に比してかなり疎であり、また個々の集晶の大きさもやや小形である (Fig. 14-A,B,C,D)。葉肉部と同様、ときどき少し大形の集晶が混在する。辺縁には砂晶 (Fig. 14-C,D), まれに単晶が存在する (Fig. 14-E,F)。

5. クロマメノキ *Vaccinium uliginosum* LINN. 長野県, 八ヶ岳 (自生品)

5.1 主脈部 脈を構成する仮道管, 篩管などの形骸は全く認められないが、主脈の存在する位置はきわめて

Fig. 14. Calcium Oxalate Crystals in Ashed Tissues of Leaves
of *Gaultheria adenothrix* (MIG.) MAXIM (margin)

normal, light; A: $\times 40$, C: $\times 100$, E: $\times 400$
crossed nicols; B: $\times 40$, D: $\times 100$, F: $\times 100$

不明瞭ながら判別できる。しかしウワウルシ、コケモモ、シラタマノキおよびアカモノとは全く異なって、脈上には結晶体は存在せず、直交ニコルでは完全に暗視野となる。

5.2 葉肉部 主脈部と同様結晶体は全く存在しない。また脈を構成する仮道管などは認められず、脈の存在位置さえ確認できない場合が多い。

5.3 辺縁部 主脈部、葉肉部と同じく、結晶体は全く存在しない。

結 論

1) ウワウルシ：すべての葉脈の上下両面側にシュウ酸カルシウムの単晶，砂晶，またはそれらが混在した結晶

体列が立体的に配列する。その配列密度はきわめて高い。しかし脈を離れれば結晶体は、ほとんど観察されない。この現象はウワウルシにおいてきわめて特徴的である。

2) コケモモ：ウワウルシの場合とは全く異なり、結晶体は、ほとんど主脈上にもみ不規則に存在し、低密度でかつ集晶である。

3) シラタマノキ：ウワウルシ、コケモモの場合とは全く異なって全葉面の部分、葉肉にも集晶が分布する。その分布度はアカモノに比して比較的疎である。

4) アカモノ：ウワウルシ、コケモモの場合とは全く異なり、シラタマノキと同様全葉面を通じて集晶が分布する。しかし特に主脈の近辺においては、主脈にそって主脈の両側に高密度に集晶が分布し、シラタマノキともかなり異なった灰化像を示す。個々の集晶の形状も、コケモモ、シラタマノキよりも一般的に整形で、ときどきやや大形の集晶が混在する。また主脈から辺縁に移行するに従って、集晶の分布度がかなり疎になっていく傾向がある。

5) クロマメノキ：全葉面を通じて、直交ニコルで完全な暗視野となり、結晶体は存在しない。

以上のように、ウワウルシとその代用品コケモモならびに類似品との相違点は判然とし、本低温灰化法が鑑別法として、きわめてすぐれていることが立証された、今後この種の鑑別法として有力な方法であると思われる。

謝辞 本研究にあたり懇切な御指導をいただいた京都大学薬学部 木島正夫教授に感謝の意を表する。また有益な御助言ならびに貴重な試料を御提供いただいた京都薬科大学 布藤昌一博士に深謝する。